

⑫ 公表特許公報(A)

平5-502686

⑬ 公表 平成5年(1993)5月13日

⑭ Int. Cl.⁵
C 08 G 18/61
C 08 L 75/04
C 09 J 175/04

識別記号
NEM
NGJ
JFB

庁内整理番号
8620-4J
8620-4J
8620-4J※

審査請求 未請求
予備審査請求 有

部門(区分) 3(3)

(全 8 頁)

⑮ 発明の名称 改良された性質を持つ湿分硬化ポリウレタンシーリングコンパウンド

⑯ 特 願 平3-501237

⑰ 翻訳文提出日 平4(1992)6月26日

⑱ 出 願 平2(1990)12月17日

⑲ 国際出願 PCT/EP90/02212

⑳ 国際公開番号 WO91/09893

㉑ 国際公開日 平3(1991)7月11日

優先権主張 ㉒ 1989年12月27日 ㉓ ドイツ(DE) ㉔ P3943090.1

⑳ 発 明 者 ボ ド ラ 、 ト ー レ ドイツ連邦共和国 デイ-4019 モーンハイム、ドイツサー・シュトラアセ 31番

㉑ 出 願 人 ヘンケル・コマンディットゲゼルシャフト・アウフ・アクチエン シュトラアセ 67番

㉒ 代 理 人 弁理士 青 山 保 外1名

㉓ 指 定 国 AT(広域特許), BE(広域特許), CA, CH(広域特許), DE(広域特許), DK(広域特許), ES(広域特許), FR(広域特許), GB(広域特許), GR(広域特許), IT(広域特許), JP, LU(広域特許), NL(広域特許), SE(広域特許), US

最終頁に続く

請求の範囲

しくは50~400 Pa.sの粘度を持つことを特徴とする接合コン

1. 充填剤、可塑剤および/または他の添加剤を含んでいてよい

パウンド。

NCO末端ポリウレタンプレポリマー系湿分硬化接合コンパウンド

6. - 20~40重量%のポリウレタンプレポリマー、

において、露置条件下で長期安定性を改良するために反応性ポリシ

- 20~40重量%の膨潤性ポリマー粉末、

ロキサンを含むことを特徴とする湿分硬化接合コンパウンド。

- 15~35重量%の可塑剤(膨潤剤)、

2. ポリウレタンプレポリマーの量に対して反応性ポリシロキサン

- 1~10重量%の膨潤剤、

を1~30重量%の量、特に5~20重量%の量で含むことを特

- 1~10重量%の顔料および染料、

徴とする請求項1記載の接合コンパウンド。

- 0.2~1.2重量%の反応性ポリシロキサン、

3. 反応性ポリシロキサンはポリウレタンプレポリマーと、およ

- 1~10重量%の安定剤、および

び/または湿分硬化の結果としてそれから形成される化合物と反応

- 必要あれば0.01~10重量%の触媒および他の補助剤

する1個またはそれ以上の官能基を含むことを特徴とする請求項1

を含んでなることを特徴とする請求項1~5のいずれかに記載の接

または2記載の接合コンパウンド。

合コンパウンド。

4. エポキシ官能および/またはシラノール官能ポリシロキサン、

7. - 25~35重量%のポリウレタンプレポリマー、

好ましくはヒドロキシ末端ポリジメチルシロキサンを含むことを特

- 25~35重量%の膨潤性ポリマー粉末、

徴とする請求項1~3のいずれかに記載の接合コンパウンド。

- 20~30重量%の可塑剤(膨潤剤)、

5. 反応性ポリシロキサンは23℃で20~500 Pa.s、好ま

- 3~7重量%の膨潤剤、

- 4~9重量%の顔料および染料、
- 1~10重量%の反応性ポリシロキサン、
- 1~5重量%の安定剤、および
- 必要あれば0.01~2重量%の触媒および他の補助剤を
含んでなることを特徴とする請求項1~6のいずれかに記載の接合
コンパウンド。
- 8. ポリウレタンプレポリマーとしてポリエーテルポリオールと
過剰のイソシアネートとの反応生成物を含むことを特徴とする請
求項1~7のいずれかに記載の接合コンパウンド。
- 9. 膨潤性ポリマー粉末としてイソシアネート不活性ポリマー、
特にポリ塩化ビニル(PVC)を含むことを特徴とする請求項1~
8のいずれかに記載の接合コンパウンド。
- 10. 可塑剤としてクロロパラフィンおよび/またはPVC可塑
剤、特にフタル酸エステルおよびアルキルスルホン酸エステル等の
可塑化エステルを含むことを特徴とする請求項1~9のいずれかに
記載の接合コンパウンド。

明 細 書

改良された性質を持つ湿分硬化ポリウレタン

シーリングコンパウンド

本発明はNCO末端ポリウレタンプレポリマー系湿分硬化接合コ
ンパウンドに関し、特に反応性ポリシロキサンを加えることによる
改良された性質を持つ湿分硬化接合コンパウンドに関する。

湿分硬化ポリウレタン系シーリングコンパウンドは、例えばドイ
ツ特許37 26 547により専門家に公知である。それらは本質
的にイソシアネート末端ポリウレタンプレポリマーと、チクソトロ
ピー剤または充填剤としてその中に存在する膨潤ポリマーよりなる。
さらに可塑剤、膨潤助剤、顔料、染料、安定剤、触媒および他の補
助剤が、追加成分としてドイツ特許37 26 547に述べられて
いる。既知のポリウレタン接合コンパウンドはそれらに対する厳密
な要請をかなり満たしているが、改善しなければならない点もいく
つかある。これは特に耐候性に当てはまる。この点に関してUV安
定性が重要である。目視による評価以外に露候接合コンパウンドの

11. 膨潤助剤としてエステル、ケトン、脂肪族炭化水素および
特に芳香族炭化水素等の有機溶剤が使用されることを特徴とする請
求項1~10のいずれかに記載の接合コンパウンド。

12. 安定剤としてC₆~₁₀オレフィン、特に分子の分枝のないこ
とが好ましいエチレン性不飽和炭化水素を含むことを特徴とする請
求項1~11のいずれかに記載の接合コンパウンド。

長期安定性を決める主要な評価基準は、本発明が改良しようとする
破断時伸びである。糸引き性や平滑性等の加工性等に関しても改良
が望まれる。

例えばドイツ特許公開32 21 655により、ベンゾフェノン
またはトリアゾール誘導体等のUV吸収剤を、UV安定性を改良す
るためにシーリングコンパウンドに加えることができることは、専
門家には公知である。これらの吸収剤は、永久的ではないが増大し
たUV安定性を提供する。ポリシロキサン系接合コンパウンドは通
常、対応するポリウレタンシーリングコンパウンドより高いUV安
定性を示すことは専門家に公知である。しかしながら、市販ポリシ
ロキサンシーリングコンパウンドは通常、例えば延展性が低い、べ
とつく、および加工中に悪臭を放つ等、ある用途には望ましくない
性質を持つ。二成分の混合物が、少なくともかなりの努力で製造さ
れたが、貯蔵性に関しては全く不十分、言い替えばこの系は分離
し易い傾向があった。分散助剤および/または乳化剤等の添加剤に
よりこの傾向を取り除く試みは、接合コンパウンドの他の性能の望

ましくない劣化を招く。

耐候安定性を改良するためにポリウレタンシーリングコンパウンドにおいて反応性ポリシロキサンを使用することは、いまだ専門家に公知でない。シロキサンおよびウレタンの化合物は原理的には公知であるが、これらの化合物はその分子構造が本発明と異なり、および／または異なった技術分野で使用されている。すなわちヨーロッパ特許250 248には、ジアミノポリシロキサンとジイソシアネートからつくられ、高圧性（接触）接着剤として使用されるポリシロキサンとウレタンセグメントを有するブロックコポリマーが記載されている。ヨーロッパ特許293 084によると、反応性ポリシロキサンが、減摩性を改良するためにポリウレタン光沢塗料中に存在する。

本発明が解決しようとする問題は、露候条件下、特にUV照射に付される露候条件下で改良された長期安定性を示す湿分硬化ポリウレタン接合コンパウンドを提供することである。さらに、本発明の湿分硬化ポリウレタン接合コンパウンドは糸引き性および平滑性、

プロパンまたはトリメチロールエタン等のトリオール、およびベンタエリスリトール等の高価ヒドロキシ化合物である。

ポリエーテルポリオールおよび／またはポリエステルポリオールが比較的高分子量のポリオール成分として一般的に使用される。ポリエーテルポリオールはエポキシドまたはテトラヒドロフランと、低分子量ポリオール成分との反応によって調製することができる。エポキシドは例えば、エチレンオキシド、プロピレンオキシド、ブチレンオキシド、ステレンオキシド、シクロヘキセンオキシド、トリクロロブチレンオキシドおよびエピクロルヒドリンであり、一方、ポリオールは例えば、エチレン、ジエチレンまたはプロピレングリコール等の化合物である。

ポリウレタンプレポリマーに対する出発原料としてのポリエステルは通常、ヒドロキシ化合物とカルボン酸との反応によって調製される。既に述べた低分子量多価ヒドロキシ成分がヒドロキシ化合物として使用できる。酸成分はアジピン酸、フタル酸、シュウ酸、マレイン酸、コハク酸、グルタル酸、アゼライン酸、セバシン酸等の

廉だって改良された加工性を示す。

本発明によればこの問題は、露候条件下で長期安定性を改良するための反応性ポリシロキサンを含むことを特徴とする、必要あれば充填剤、可塑剤および／または他の添加剤を含むNCO末端ポリウレタンプレポリマー系湿分硬化接合コンパウンドによって解決される。

本発明の湿分硬化接合コンパウンドは、1分子当り平均して2個以上のイソシアネート基を持つポリウレタンプレポリマーを含む。ポリウレタンプレポリマーは、2以上の官能基を持つアルコールと、2以上の官能基を持つ過剰のイソシアネートとを混合することにより調製できる。生成物の性質は使用量に影響される。

適当なポリオール成分は低分子量および高分子量化合物の双方である。ポリウレタンプレポリマーのためにポリオール成分として使用される低分子量化合物は例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、ネオペンチルグリコール、ブタン-1,4-ジオール、ヘキサン-1,6-ジオール、およびグリセロール、トリメチロール

化合物、およびトリカルボン酸である。ポリウレタンプレポリマーの製造のために適したポリエステルは、例えばε-カプロラクトンまたはメチルε-カプロラクトン等の開環重合によっても得られる。しかしながらポリエステルおよびポリエーテルに加えて、天然物質、たとえばいわゆる油脂化学的ポリオールまたはひまし油がポリオール成分として使用できる。

本発明によれば、好ましいポリオールはポリエーテルポリオールであり、特にグリセロール、プロピレンオキシド付加化合物およびポリプロピレングリコールの反応によって得られるタイプのポリエーテルポリオールである。

芳香族および脂肪族および／または脂環式イソシアネートの双方がイソシアネート成分として使用される。2以上の官能基を持つ過剰なイソシアネートは例えば、トリレンジイソシアネートの異性体、イソホロンジイソシアネート、ジシクロヘキシルメタンジイソシアネート、テトラメチレンジイソシアネート、トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、トリメチルキレンジイソシアネート、ヘ

キサメチレンジイソシアネートおよびジフェニルメタンジイソシアネート、または例えば4,4',4"-トリフェニルメタントリイソシアネート等のトリイソシアネートである。本発明によれば、芳香族ジイソシアネート、特に工業的ジフェニルメタン-4,4'-ジイソシアネート(MDI)およびトリレンジイソシアネート(TDI)が好ましい。

好ましい1つの態様では、ポリウレタンプレポリマーはグリセロール/プロピレンオキサイド付加化合物および/またはポリプロピレングリコールと、工業的ジフェニルメタンジイソシアネートおよび/または工業的トリレンジイソシアネートとの反応によって調製される。イソシアネートは、生成したポリウレタンプレポリマーが反応性NCO基を含む様に、過剰に使用されることが好ましい。

接合コンパウンドの安定性は、一般的に充填剤としても公知の固形微粒子を添加して達成される。一般に充填剤は適用後、接合の界面方向に膨れ上がることを防止するために必要な内部張力をシールリングコンパウンドが持つことを保証する。上記系加

プレポリマーのイソシアネート基と反応してはならない。従って例えばポリ塩化ビニル粉末がチクソトロピー剤として添加される場合、フタル酸エステル類からの可塑剤が使用される。フタル酸エステル類からの適当な化合物の例はフタル酸ジオクチル、フタル酸ジブチルおよびフタル酸ベンジルブチルである。要請される性質を持つ他の類の化合物はクロロパラフィン、フェノールまたはクレゾールなどのアルキルスルホン酸エステル、および脂肪族酸エステルである。アルキルスルホン酸エステル系可塑剤、および影響性ポリマー粉末としてのポリ塩化ビニルが本発明の目的のために特に適している。

腐蝕の影響に対する長期安定性を改良するため、本発明の接合コンパウンドは反応性ポリシロキサンを含有する。反応性ポリシロキサンとは、シールリングコンパウンドのイソシアネート末端、および/または湿分硬化によりそれから生じる化合物と反応する少なくとも一つの基を主鎖または側鎖に含むポリシロキサンである。この様なポリシロキサンは例えば、エポキシ活性ポリシロキサン、ポリハイドロジェンアルキルシロキサンおよび/またはシラノール活性ポ

リまたは充填剤は、顔料と、チクソトロピー化充填剤、または略してチクソトロピー化剤として知られる充填剤に分けられる。ポリウレタンプレポリマー系接合コンパウンドの場合、チクソトロピー剤は別な要請にも合致しなければならない。例えば、イソシアネート基と望ましくない反応があってはならない。従ってチクソトロピー剤は基本的に影響性ポリマー粉末から選択できる。適当なポリマー粉末の例はポリアクリロニトリル、ポリウレタン、ポリ塩化ビニル、ポリアクリレート、ポリビニルアルコール、ポリビニルアセテートおよび対応するコポリマーである。微粉末ポリ塩化ビニルで特に良い結果が得られる。

ポリウレタン接合コンパウンドの性質は、チクソトロピー剤として使われるポリマー粉末に追加成分を添加することにより、さらに改良される。これらの追加成分は可塑剤、またはむしろプラスチックに使用される影響剤および影響剤の部材に入る物質である。この点に關し、プレポリマー/ポリマー粉末/可塑剤/影響剤系の最適組成を決めることが必要である。例えば、可塑剤と影響剤は

リシロキサンである。エポキシ活性シロキサンは、専門家には活性エポキシアルキル側鎖基を含む化学的活性シリコン油であると理解されている。さらにポリメチルヒドロジェンシロキサンも反応性ポリシロキサンとして存在してよい。シラノール活性シロキサンは、少なくとも一つの末端シラノール基を含むアルキルシロキサンポリマーである。これらのいわゆるシラノール油は、典型的なシリコン油の反応性類似体と見なされる。本発明の接合コンパウンドには、好ましくはヒドロキシ末端ポリジメチルシロキサンが含まれる。

本発明の接合コンパウンドの腐蝕の影響、特に紫外線の影響に対する長期安定性の改良の正確な理由はいまだ充分には明白にされていないが、かなり改良されることは事実である。これは既知のポリウレタン接合コンパウンドと比較した本発明の腐蝕接合コンパウンドの表面の日視による評価、および伸び値、特に破断時伸びの双方に当てはまる。本発明の接合コンパウンドは、従来のポリウレタン接合コンパウンドよりもかなり優れた粘りつきおよび平滑性を示す。

本発明の接合コンパウンドはまた、触れて容易に分かる様に、より滑らかな感触を持つ。本発明の接合コンパウンドはまた触れて分かる様に、硬化中の被覆形成後、ポリウレタン接合コンパウンドに典型的な表面粘着性の明白な減少を示す。

改良された上記性質はとりわけ、二つの基本的には混和しない、または混和しにくい、および/または非永久的には混和しない液体が化学接合で相互に結合し、そのためにそれらが分離できないという事実に関連する。しかしながら同時に光学的な印象は、本質的に透明なポリウレタンプレポリマーを本質的に透明な反応性シロキサンと混合したとき、混合物が不透明または曇った状態になるか、または微分散エマルジョンの様相を呈するという事実で説明される二相系の印象である。反応基が末端にあることが好ましい反応性ポリシロキサンは、混合中にポリイソシアネート基および/または湿分硬化によりそれから生成するポリウレタンプレポリマーの高と反応することができ、そのため分離が永久的に抑制される。

好ましい態様の一つでは、反応性ポリシロキサンはポリウレタン

るまで劣化する。さらに高いポリシロキサン含有量は一般的にべとつた感じを有する汚れ易い表面と、破断時伸びの減少を招く。

本発明に指摘された問題を解決する湿分硬化接合コンパウンドは20~40重量%のポリウレタンプレポリマー、20~40重量%の膨潤性ポリマー粉末、15~35重量%の可塑剤または膨潤剤、1~10重量%の膨潤助剤、0.2~12重量%の反応性シロキサン、1~10重量%の顔料および染料、1~10%の安定剤および必要あれば0.01~10重量%の触媒および他の補助剤を含んでなる。

適した膨潤助剤は、ポリマー粉末および可塑剤と混和できるが、ポリウレタンプレポリマーのイソシアネート基と反応しない低分子量の有機物質である。この様な膨潤助剤の例はポリマーおよびプラスチックに関する関連の専門ハンドブックに見いだされる。ポリ塩化ビニル粉末に対する好ましい膨潤助剤はエステル、ケトン、脂肪族炭化水素、芳香族炭化水素およびアルキル置換基を含む芳香族炭化水素である。最後に述べた膨潤助剤、特にキシレンは、本発明にお

ブレポリマーの反応性基と反応できる反応性基をただ一つだけ含み、そのため反応後、ポリシロキサンはポリウレタン高分子の末端を形成する。本発明の接合コンパウンドはこの場合に、都合のよい加工性を示す。

本発明の接合コンパウンドの加工性、およびその長期安定性には、23℃で25~500 Pa.sの範囲、好ましくは50~400 Pa.sの範囲の反応性ポリシロキサンの粘度が都合よい。

反応性ポリシロキサンの量とポリウレタンプレポリマーの量との比率はまた、接合コンパウンドの上記性質を最適化し改良するための重要な要素である。ポリウレタンプレポリマーの量に対して1~30重量%、特に5~20重量%の量の反応性ポリシロキサンが好ましい。反応性シロキサンが1重量%より少ない場合、接合コンパウンドの腐蝕安定性に顕著な改良をもたらさない。30重量%より多い反応性シロキサンを含む接合コンパウンドは同様に加工できるが、それらは性能に望ましくない顕著な劣化をもたらす。例えば、それらの弾性、特にレジリエンスは腐蝕後、表面に収縮亀裂が現れ

いてポリ塩化ビニルに対する好ましい膨潤助剤として使用される。

本発明の接合コンパウンドに使用される顔料および染料は、二酸化チタン、酸化鉄およびカーボンブラック等の、通常使用されるような公知の物質であってもよい。接合コンパウンドの保存安定性は塩化ベンゾイル、塩化アセチル、トルエンスルホン酸メチルエステル、カルボジイミドおよび/またはポリカルボジイミド等の安定剤の添加により改良されることは公知である。8~20炭素原子を有するオレフィンが特に優れた安定剤であることがわかっている。

その安定化効果の他、これらの安定剤は可塑剤および膨潤剤の役目も果たすことができる。特に二重結合が1,2-位にある場合、8~18炭素原子を有するオレフィンを使用することが好ましい。これらの安定剤の分子構造が線状であるとき、最良の結果が得られる。

接合コンパウンドはさらにまた、反応を促進するため、触媒、例えばジブチル錫ジラウレート、ジブチル錫ジアセテートおよび/またはオクタン酸錫(II)を触媒量で含む。本発明において、例えば硬化剤、乾燥剤およびカップリング剤等が他の補助剤である。

- 15重量部の工業的ジフェニルメタン-4,4'-ジイソシアネ

ート(MDI)

より調製された。

350 Pa.sの粘度を持つジヒドロキシポリジメチルシロキサンを反応性シロキサンとして使用した。接合コンパウンドは以下の様にして調製した。

アルキルスルホン酸エステル、クロロパラフィン、PVC粉末および顔料のペーストを70℃に加熱した。40℃に冷却後、プレポリマーおよび他の成分を攪はんしながら加え、30sbarで脱気した。

実施例 (No.)

成分	1	2	3	4	5	6
PUプレポリマー	29	29	28	29	29	29
反応性ポリプロピレン	0	0.5	1.0	2.0	4.0	6.0
アクリル酸メタクリル	18.3	18.1	17.95	17.6	17.0	16.3
クロロパラフィン	7.9	7.8	7.75	7.6	7.3	7.1
PVC粉末	31.3	31.1	30.8	30.3	29.2	28.1
TiO ₂	5	5	5	5	5	5
他の顔料と添加剤	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5

(実施例1および2は比較例である)

加工性の試験

試験雰囲気

標準条件雰囲気

23℃/50%相対湿度

引っ張り試験機

汎用試験機

この装置はDIN 51 220による材料試験機に対する一般ガイドライン、および加えられた負荷に関しDIN 51 221のクラス1に対応する。

試験材料は「サンテス・シーピーエス(SUNTEST CPS)」(注水、露光なし)中で露光した。

サイクル:

注水時間 10分

露光時間 180分

サイクル数 150

150サイクル後の露光材料

本発明の接合コンパウンドに使用されるポリウレタンプレポリマー、ポリマー粉末、可塑剤、膨潤剤、顔料および染料、反応性ポリシロキサン、安定剤、触媒および他の補助剤からなる混合物は、接合コンパウンドが満足しようとする特定の要請に合致するよう配合されなければならない。本発明によると、好ましい接合コンパウンドは25~35重量%のポリウレタンプレポリマー、25~35重量%の膨潤性ポリマー粉末、20~30重量%の可塑剤または膨潤剤、3~7重量%の膨潤剤、4~9重量%の顔料および染料、1~5重量%の安定剤および1~10重量%の反応性ポリシロキサン、および必要あれば0.01~2重量%の触媒および他の補助剤を含む。

以下、実施例により本発明を具体的に説明する。

実施例

以下の全ての実施例に使用されるポリウレタンは、

- 62重量部のポリプロピレングリコール
- 24重量部のポリエーテルポリオール、および

官能検査において、本発明に従う全ての実施例で糸引き性および平滑性等の加工性に顕著な改良が認められた。さらに一成分型ポリウレタン接合コンパウンドに特有の、被覆形成後の表面粘着性が顕著に減少した。

露光条件下での長期安定性の試験

特定の型中、接合コンパウンドから厚さ約3mmの板を形成し、硬化後、以下の寸法を持った試験片を板から切り出した。

全長	約80mm
ヘッド幅	20mm
ウェブ長	50mm
ウェブ幅	10mm
厚み	1.0~4.0mm
測定長	40mm

引っ張り強度、破断伸びおよびモジュラスをDIN 53 504(1975年版)およびISO/R37に従って測定した。

フィード速度 150mm/min.

No.	引っ張り強度 N/mm ²	破断時伸び %	モジュラス N/mm ²	
			伸び100%	伸び600%
1	0.98	1156	0.40	0.68
2	0.75	1138	0.38	0.66
3	0.90	1144	0.36	0.65
4	1.05	1257	0.37	0.68
5	1.01	1328	0.32	0.57
6	1.00	1372	0.31	0.60

本発明に従う実施例において破断時伸びは反応性ポリシロキサン含有量を増すと顕著に増加し、一方伸び100%および600%でのモジュラスはこのシリーズで顕著な減少を示すことが表から分かる。

実施例1〜6の露光しない試験試料の破断時伸び、モジュラスおよび引っ張り強度は相互にほとんど差がない。

さらに露光試験試料をスクールマークの原則に沿って目視で評価した。試験試料を表面の品質について評価した。それらは以下のマークに従い、異なる程度のひび割れ形成（皸皮）を示す。

No.	マーク
1	5.0
2	4.5
3	3.0
4	2.5
5	2.0
6	2.0

本発明は充填剤、可塑剤および/または他の添加剤を含んでいてよい、末端NCO基を持ったポリウレタンプレポリマー系成分硬化結合充填コンパウンドに関する。これらのコンパウンドはまた長期耐候性を向上する反応性ポリシロキサンを含む。

国際調査報告

International Application No. PCT/EP 90/02212

1. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER (Inventor's classification, not to be used for publication purposes)	
According to International Patent Classification (IPC) or to both National Classification and IPC	
Int.Cl.: C 08 G 10/10	
2. FIELD OF SEARCH	
Classification System	
Int.Cl.: C 08 C	
3. DOCUMENTS CITED TO BE RELEVANT	
Category	Reference to Class No. of
X	DE, A, 3429137 (HEPTEL) 3 March 1968, see column 3, line 34 - column 7, line 9; claims 1-13
X	EP, A, 0326704 (MORTON) 3 August 1989, see page 2, line 44 - page 3, line 38; claim 1, examples 28-30
X	EP, A, 0305805 (BAYER) 8 March 1989, see page 2, line 33 - page 7, line 11; claims 1-7
X	EP, A, 0268780 (KAWAZURUCHI KAGAKU) 1 June 1988, see page 2, line 50 - page 9, line 28; claims 1-4
A	EP, A, 0259444 (BAYER) 16 March 1988, see page 2, line 50 - page 4, line 11; claim 1.2
A	EP, A, 0300304 (HEPTEL) 25 January 1989
A	EP, A, 0293084 (LORD) 30 November 1988 (cited in the application)
A	EP, A, 0301136 (HEPTEL) 15 February 1989 (cited in the application)
4. SUMMARY OF THE INVENTION	
5. BRIEF DESCRIPTION OF THE DRAWINGS	
6. STATEMENT OF THE INVENTOR	
7. ABSTRACT	
8. CLAIMS	
9. REFERENCES	
10. OTHER INFORMATION	
11. SIGNATURE	
12. DATE	
13. ADDRESS	
14. ATTORNEY	
15. OTHER INFORMATION	
16. SIGNATURE	
17. DATE	
18. ADDRESS	
19. ATTORNEY	
20. OTHER INFORMATION	
21. SIGNATURE	
22. DATE	
23. ADDRESS	
24. ATTORNEY	
25. OTHER INFORMATION	
26. SIGNATURE	
27. DATE	
28. ADDRESS	
29. ATTORNEY	
30. OTHER INFORMATION	
31. SIGNATURE	
32. DATE	
33. ADDRESS	
34. ATTORNEY	
35. OTHER INFORMATION	
36. SIGNATURE	
37. DATE	
38. ADDRESS	
39. ATTORNEY	
40. OTHER INFORMATION	
41. SIGNATURE	
42. DATE	
43. ADDRESS	
44. ATTORNEY	
45. OTHER INFORMATION	
46. SIGNATURE	
47. DATE	
48. ADDRESS	
49. ATTORNEY	
50. OTHER INFORMATION	
51. SIGNATURE	
52. DATE	
53. ADDRESS	
54. ATTORNEY	
55. OTHER INFORMATION	
56. SIGNATURE	
57. DATE	
58. ADDRESS	
59. ATTORNEY	
60. OTHER INFORMATION	
61. SIGNATURE	
62. DATE	
63. ADDRESS	
64. ATTORNEY	
65. OTHER INFORMATION	
66. SIGNATURE	
67. DATE	
68. ADDRESS	
69. ATTORNEY	
70. OTHER INFORMATION	
71. SIGNATURE	
72. DATE	
73. ADDRESS	
74. ATTORNEY	
75. OTHER INFORMATION	
76. SIGNATURE	
77. DATE	
78. ADDRESS	
79. ATTORNEY	
80. OTHER INFORMATION	
81. SIGNATURE	
82. DATE	
83. ADDRESS	
84. ATTORNEY	
85. OTHER INFORMATION	
86. SIGNATURE	
87. DATE	
88. ADDRESS	
89. ATTORNEY	
90. OTHER INFORMATION	
91. SIGNATURE	
92. DATE	
93. ADDRESS	
94. ATTORNEY	
95. OTHER INFORMATION	
96. SIGNATURE	
97. DATE	
98. ADDRESS	
99. ATTORNEY	
100. OTHER INFORMATION	
101. SIGNATURE	
102. DATE	
103. ADDRESS	
104. ATTORNEY	
105. OTHER INFORMATION	
106. SIGNATURE	
107. DATE	
108. ADDRESS	
109. ATTORNEY	
110. OTHER INFORMATION	
111. SIGNATURE	
112. DATE	
113. ADDRESS	
114. ATTORNEY	
115. OTHER INFORMATION	
116. SIGNATURE	
117. DATE	
118. ADDRESS	
119. ATTORNEY	
120. OTHER INFORMATION	
121. SIGNATURE	
122. DATE	
123. ADDRESS	
124. ATTORNEY	
125. OTHER INFORMATION	
126. SIGNATURE	
127. DATE	
128. ADDRESS	
129. ATTORNEY	
130. OTHER INFORMATION	
131. SIGNATURE	
132. DATE	
133. ADDRESS	
134. ATTORNEY	
135. OTHER INFORMATION	
136. SIGNATURE	
137. DATE	
138. ADDRESS	
139. ATTORNEY	
140. OTHER INFORMATION	
141. SIGNATURE	
142. DATE	
143. ADDRESS	
144. ATTORNEY	
145. OTHER INFORMATION	
146. SIGNATURE	
147. DATE	
148. ADDRESS	
149. ATTORNEY	
150. OTHER INFORMATION	
151. SIGNATURE	
152. DATE	
153. ADDRESS	
154. ATTORNEY	
155. OTHER INFORMATION	
156. SIGNATURE	
157. DATE	
158. ADDRESS	
159. ATTORNEY	
160. OTHER INFORMATION	
161. SIGNATURE	
162. DATE	
163. ADDRESS	
164. ATTORNEY	
165. OTHER INFORMATION	
166. SIGNATURE	
167. DATE	
168. ADDRESS	
169. ATTORNEY	
170. OTHER INFORMATION	
171. SIGNATURE	
172. DATE	
173. ADDRESS	
174. ATTORNEY	
175. OTHER INFORMATION	
176. SIGNATURE	
177. DATE	
178. ADDRESS	
179. ATTORNEY	
180. OTHER INFORMATION	
181. SIGNATURE	
182. DATE	
183. ADDRESS	
184. ATTORNEY	
185. OTHER INFORMATION	
186. SIGNATURE	
187. DATE	
188. ADDRESS	
189. ATTORNEY	
190. OTHER INFORMATION	
191. SIGNATURE	
192. DATE	
193. ADDRESS	
194. ATTORNEY	
195. OTHER INFORMATION	
196. SIGNATURE	
197. DATE	
198. ADDRESS	
199. ATTORNEY	
200. OTHER INFORMATION	
201. SIGNATURE	
202. DATE	
203. ADDRESS	
204. ATTORNEY	
205. OTHER INFORMATION	
206. SIGNATURE	
207. DATE	
208. ADDRESS	
209. ATTORNEY	
210. OTHER INFORMATION	
211. SIGNATURE	
212. DATE	
213. ADDRESS	
214. ATTORNEY	
215. OTHER INFORMATION	
216. SIGNATURE	
217. DATE	
218. ADDRESS	
219. ATTORNEY	
220. OTHER INFORMATION	
221. SIGNATURE	
222. DATE	
223. ADDRESS	
224. ATTORNEY	
225. OTHER INFORMATION	
226. SIGNATURE	
227. DATE	
228. ADDRESS	
229. ATTORNEY	
230. OTHER INFORMATION	
231. SIGNATURE	
232. DATE	
233. ADDRESS	
234. ATTORNEY	
235. OTHER INFORMATION	
236. SIGNATURE	
237. DATE	
238. ADDRESS	
239. ATTORNEY	
240. OTHER INFORMATION	
241. SIGNATURE	
242. DATE	
243. ADDRESS	
244. ATTORNEY	
245. OTHER INFORMATION	
246. SIGNATURE	
247. DATE	
248. ADDRESS	
249. ATTORNEY	
250. OTHER INFORMATION	
251. SIGNATURE	
252. DATE	
253. ADDRESS	
254. ATTORNEY	
255. OTHER INFORMATION	
256. SIGNATURE	
257. DATE	
258. ADDRESS	
259. ATTORNEY	
260. OTHER INFORMATION	
261. SIGNATURE	
262. DATE	
263. ADDRESS	
264. ATTORNEY	
265. OTHER INFORMATION	
266. SIGNATURE	
267. DATE	
268. ADDRESS	
269. ATTORNEY	
270. OTHER INFORMATION	
271. SIGNATURE	
272. DATE	
273. ADDRESS	
274. ATTORNEY	
275. OTHER INFORMATION	
276. SIGNATURE	
277. DATE	
278. ADDRESS	
279. ATTORNEY	
280. OTHER INFORMATION	
281. SIGNATURE	
282. DATE	
283. ADDRESS	
284. ATTORNEY	
285. OTHER INFORMATION	
286. SIGNATURE	
287. DATE	
288. ADDRESS	
289. ATTORNEY	
290. OTHER INFORMATION	
291. SIGNATURE	
292. DATE	
293. ADDRESS	
294. ATTORNEY	
295. OTHER INFORMATION	
296. SIGNATURE	
297. DATE	
298. ADDRESS	
299. ATTORNEY	
300. OTHER INFORMATION	
301. SIGNATURE	
302. DATE	
303. ADDRESS	
304. ATTORNEY	
305. OTHER INFORMATION	
306. SIGNATURE	
307. DATE	
308. ADDRESS	
309. ATTORNEY	
310. OTHER INFORMATION	
311. SIGNATURE	
312. DATE	
313. ADDRESS	
314. ATTORNEY	
315. OTHER INFORMATION	
316. SIGNATURE	
317. DATE	
318. ADDRESS	
319. ATTORNEY	
320. OTHER INFORMATION	
321. SIGNATURE	
322. DATE	
323. ADDRESS	
324. ATTORNEY	
325. OTHER INFORMATION	
326. SIGNATURE	
327. DATE	
328. ADDRESS	
329. ATTORNEY	
330. OTHER INFORMATION	
331. SIGNATURE	
332. DATE	
333. ADDRESS	
334. ATTORNEY	
335. OTHER INFORMATION	
336. SIGNATURE	
337. DATE	
338. ADDRESS	
339. ATTORNEY	
340. OTHER INFORMATION	
341. SIGNATURE	
342. DATE	
343. ADDRESS	
344. ATTORNEY	
345. OTHER INFORMATION	
346. SIGNATURE	
347. DATE	
348. ADDRESS	
349. ATTORNEY	
350. OTHER INFORMATION	
351. SIGNATURE	
352. DATE	
353. ADDRESS	
354. ATTORNEY	
355. OTHER INFORMATION	
356. SIGNATURE	
357. DATE	
358. ADDRESS	
359. ATTORNEY	
360. OTHER INFORMATION	
361. SIGNATURE	
362. DATE	
363. ADDRESS	
364. ATTORNEY	
365. OTHER INFORMATION	
366. SIGNATURE	
367. DATE	
368. ADDRESS	
369. ATTORNEY	
370. OTHER INFORMATION	
371. SIGNATURE	
372. DATE	
373. ADDRESS	
374. ATTORNEY	
375. OTHER INFORMATION	
376. SIGNATURE	
377. DATE	
378. ADDRESS	
379. ATTORNEY	
380. OTHER INFORMATION	
381. SIGNATURE	
382. DATE	
383. ADDRESS	
384. ATTORNEY	
385. OTHER INFORMATION	
386. SIGNATURE	
387. DATE	
388. ADDRESS	
389. ATTORNEY	
390. OTHER INFORMATION	
391. SIGNATURE	
392. DATE	
393. ADDRESS	
394. ATTORNEY	
395. OTHER INFORMATION	
396. SIGNATURE	
397. DATE	
398. ADDRESS	
399. ATTORNEY	
400. OTHER INFORMATION	
401. SIGNATURE	
402. DATE	
403. ADDRESS	
404. ATTORNEY	
405. OTHER INFORMATION	
406. SIGNATURE	
407. DATE	
408. ADDRESS	
409. ATTORNEY	
410. OTHER INFORMATION	
411. SIGNATURE	
412. DATE	
413. ADDRESS	
414. ATTORNEY	
415. OTHER INFORMATION	
416. SIGNATURE	
417. DATE	
418. ADDRESS	
419. ATTORNEY	
420. OTHER INFORMATION	
421. SIGNATURE	
422. DATE	
423. ADDRESS	
424. ATTORNEY	
425. OTHER INFORMATION	
426. SIGNATURE	
427. DATE	
428. ADDRESS	
429. ATTORNEY	
430. OTHER INFORMATION	
431. SIGNATURE	
432. DATE	
433. ADDRESS	
434. ATTORNEY	
435. OTHER INFORMATION	
436. SIGNATURE	
437. DATE	
438. ADDRESS	
439. ATTORNEY	
440. OTHER INFORMATION	
441. SIGNATURE	
442. DATE	
443. ADDRESS	
444. ATTORNEY	
445. OTHER INFORMATION	
446. SIGNATURE	
447. DATE	
448. ADDRESS	
449. ATTORNEY	
450. OTHER INFORMATION	
451. SIGNATURE	
452. DATE	
453. ADDRESS	
454. ATTORNEY	
455. OTHER INFORMATION	
456. SIGNATURE	
457. DATE	
458. ADDRESS	
459. ATTORNEY	
460. OTHER INFORMATION	
461. SIGNATURE	
462. DATE	
463. ADDRESS	
464. ATTORNEY	
465. OTHER INFORMATION	
466. SIGNATURE	
467. DATE	
468. ADDRESS	
469. ATTORNEY	
470. OTHER INFORMATION	
471. SIGNATURE	
472. DATE	
473. ADDRESS	
474. ATTORNEY	
475. OTHER INFORMATION	
476. SIGNATURE	
477. DATE	
478. ADDRESS	
479. ATTORNEY	
480. OTHER INFORMATION	
481. SIGNATURE	
482. DATE	
483. ADDRESS	
484. ATTORNEY	
485. OTHER INFORMATION	
486. SIGNATURE	
487. DATE	

第1頁の続き

④Int. Cl.⁵

C 09 K 3/10

//(C 08 L 75/04
83:04)

識別記号

D
G

庁内整理番号

9159-4H
9159-4H

④発 明 者 マヨロ、マルティーン

ドイツ連邦共和国 デイ-5240 エルケレンツ、ザンクト・マルテ
イヌスシュトラアセ 33番

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☒ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.